

14 JAN 2005

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 10 月 14 日 (14.10.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/087401 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: B29C 55/02, B32B 27/32, C08J 5/18 (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西島 茂俊 (NISHIJIMA, Shigetoshi) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県 袖ヶ浦市 長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 伊牟田 伸一 (IMUTA, Shinichi) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県 袖ヶ浦市 長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 広瀬 敏行 (HIROSE, Toshiyuki) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県 袖ヶ浦市 長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/004290
- (22) 国際出願日: 2004 年 3 月 26 日 (26.03.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2003-92796 2003 年 3 月 28 日 (28.03.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒105-7117 東京都 港区 東新橋一丁目 5 番 2 号 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,

[続葉有]

(54) Title: STRETCHED FILM AND METHOD FOR PRODUCTION THEREOF

(54) 発明の名称: 延伸フィルムおよびその製造方法

(57) Abstract: A stretched film, which has a layer (A) comprised of a copolymer prepared from 80 mole % or more of 4-methyl-1-pentene and ethylene or an  $\alpha$ -olefin having 3 to 20 carbon atoms as at least one outermost layer, wherein the stretched film exhibits a thermal shrinkage percentage in the direction of stretching of 20 % or more, or exhibits a release area of 50 % or more when heat-treated together with a copper foil surface having been subjected to a roughening treatment; and a method for producing the stretched film. The stretched film has a high rigidity and high thermal resistance, and exhibits good releasability from a copper foil surface having been subjected to a roughening treatment, such as a copper foil surface having been subjected to the blackening treatment, that is, oxidation of the surface and then etching with an acid, and thus, can be suitably used as a releasing film for producing a multilayer printed board (MLB).

(57) 要約:

高い剛性と高い耐熱性を有するフィルムであって、表面酸化、酸によるエッチングを行った黒化処理銅箔面のような、表面を粗化处理した銅箔面からの離型性が良く、多層プリント基板 (MLB) 製造用離型フィルムに適したフィルムとその製造方法を提供する。

本発明のフィルムは、4-メチル-1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとから得られる共重合体からなる層 (A) を少なくとも一方の最外層とするフィルムであり、延伸方向の熱収縮率が20%以上、または表面を粗化处理した銅箔面と加熱処理したときの離型面積が50%以上である延伸フィルムである。

WO 2004/087401 A1



SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,  
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG,  
CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が  
可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL,  
SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG,  
KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY,  
CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC,

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

## 延伸フィルムおよびその製造方法

5

## 技術分野

本発明は、離型性に優れた高耐熱性フィルムおよびその製造方法に関するもので、さらに詳しくは、離型フィルムとして有用な4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3〜20の $\alpha$ -オレフィンからなる4-メチル-1-ペン  
10 テン共重合体フィルムおよびその製造方法に関するものである。

## 背景技術

近年、電子機器の急速な進歩に伴い、ICの集積度が増大するにつれ、より高  
15 精度、高密度、高信頼性化への要求に対応する目的でプリント配線板が多用されている。

このプリント配線基板としては、片面プリント配線板、両面プリント配線板、多層プリント配線板、フレキシブルプリント配線板がある。なかでも3層以上の導体の中間に絶縁層をおいて一体化し、任意の導体相互および実装する電子部品  
20 と任意の導体層との接続ができる点で多層プリント基板（以後「MLB」と略す。）の応用分野は広がっている。

このMLBは、例えば一対の片面銅張積層板、または一対の両面銅張積層板を両面外装としてその内側に一層または二層以上の内層回路板をプリプレグ（エポキシ樹脂等）を介在させて交互に積み重ね、これらを治具で挟持するとともにク  
25 ッション材を介してプレス熱板で熱プレスして、プリプレグを硬化させて強固に一体化された積層体を形成し、穴開け、スルーホールメッキなどを行った後、表面をエッチングすることで形成される。

このようなMLBを製造する際には、通常銅張積層板（外装板）と治具との間に離型フィルムが用いられる。この離型フィルムとしては、4-メチル-1-ペ

ンテン共重合体、ポリテトラフルオロエチレン、アセテート、ポリエステル、ポリプロピレンなどの加熱加圧工程で溶融しない高耐熱性の樹脂が使用される。

銅貼積層板の銅箔にはエポキシ樹脂との接着性を高めるために表面を酸化したり、酸によるエッチング処理をおこなうことで荒らした、いわゆる黒化処理銅箔  
5 のような表面を粗化処理した銅箔がしばしば使用される。この場合には、上記の各離型フィルムにおいては剛性の不足により、加熱加圧工程で上記銅箔面がフィルム表面に食い込み、離型フィルムが剥離できなくなるという問題が起こることがある。

特開平3-73588号公報には、4-メチル-1-ペンテン共重合体フィルム  
10 ムを一軸延伸して、剛性を高めたフィルムを離型フィルムとして使用することが提案されている。しかしながら、4-メチル-1-ペンテン共重合体フィルムは生産性や延伸できる倍率も十分なものではなく、フィルムの外観および黒化処理銅箔面などの表面を粗化処理した銅箔面からの離型性に課題を有している。

特開2002-225207号公報には、4-メチル-1-ペンテン共重合体  
15 とポリエチレンまたはポリプロピレンからなる多層フィルムを延伸すると、延伸時に延伸むら、破れが少なく、剛性の高いMLB製造用の離型フィルムに好適な延伸フィルムが得られたことが述べられている。しかしながら、MLB製造に際して熱プレス時の温度が高いと、スルーホール部分に離型フィルムが食い込みフィルムが変形し、離型後に平面を保てない課題を有している。

20 特開2003-1772号公報には、4-メチル-1-ペンテン共重合体と無機フィラーが添加されたポリエチレンまたはポリプロピレンからなる多層フィルムは、剛性の高いMLB製造用の離型フィルムに好適であることが述べられている。

特開平6-134948号公報には、特定の厚み範囲で、中心層が耐熱性シリ  
25 コーンを含む4-メチル-1-ペンテン樹脂であり、その両側にポリプロピレン樹脂を積層した二軸配向多層フィルムを剥離して、ポリプロピレンフィルムを生産する技術について述べられている。しかしながら、当該技術はコンデンサー用途に適する薄物ポリプロピレンを製造するものであり、離型フィルムに適した離型性が良好な4-メチル-1-ペンテン樹脂フィルムについては開示していない。

また、当該技術でポリプロピレンフィルムと同時に得られる 4-メチル-1-ペンテン樹脂の二軸配向フィルムでは、熱収縮率が 20%以上で、厚みむらが少なく、かつ外観が良好なフィルムを得ることができず、さらに厚みが薄いため離型フィルムとして使用するには強度が弱く、破れて破損したフィルムが離型面に残るなど、黒化処理銅箔面などの表面を粗化処理した銅箔面からの離型性に課題を有している。

### 発明の開示

10 本発明は、4-メチル-1-ペンテンを 80モル%以上有する 4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数 3~20 の他の  $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなり、実質的にワックスまたはシリコーンを含まない層 (A) を少なくとも一方の最外層とするフィルムであり、表面を粗化処理した銅箔面と加熱加圧処理した時の剥離面積が 50%以上である延伸フィルムを提供する。

15 また、4-メチル-1-ペンテンを 80モル%以上有する 4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数 3~20 の他の  $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなる層 (A) を少なくとも一方の最外層とするフィルムであり、延伸方向の熱収縮率が 20%以上である延伸フィルムを提供する。

20 また、4-メチル-1-ペンテンを 80モル%以上有する 4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数 3~20 の他の  $\alpha$ -オレフィンとから得られる共重合体からなる層 (A) と、それに接して積層された他の熱可塑性樹脂からなる層 (B) を含む多層フィルムを延伸した後、該層 (A) および (B) 間を剥離することによって得られる、少なくとも一方の最外層が剥離後の層 (A) であるフィルムを提供する。

25 また、前記層 (A) および (B) 間が、剥離強度 500 g/15mm 以下 (JIS K6854 に基づき、Tピール、23℃で、速度 300 mm/分で測定) で剥離しうる多層フィルムである前記剥離後のフィルムを提供する。

また、本発明は、4-メチル-1-ペンテンを 80モル%以上有する 4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数 3~20 の他の  $\alpha$ -オレフィンと

の共重合体からなり実質的にワックスまたはシリコーンを含まない層（A）の少なくとも一方の最外層に他の熱可塑性樹脂からなる層（B）を設けてなるシートを延伸し、次いで少なくとも一方の最外層の他の熱可塑性樹脂からなる層（B）を剥離除去することを特徴とする延伸フィルムの製造方法を提供する。

5

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3～20の他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなる層（A）を少なくとも一方の最外層とする、実質的にワックスおよびシリコーンを含まないフィルムであり、表面を粗化処理した銅箔面からの剥離面積が50%以上または、延伸方向の熱収縮率が20%以上である延伸フィルムについて以下に説明する。

また、4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3～20の他の $\alpha$ -オレフィンとから得られる共重合体からなる層（A）と、それに接して積層された他の熱可塑性樹脂からなる層（B）を含む多層フィルムを延伸した後、該層（A）および（B）間を剥離することによって得られる、少なくとも一方の最外層が剥離後の層（A）であるフィルムおよび、そのフィルムを製造するための優れた方法について説明する。

20 [4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3～20の他の $\alpha$ -オレフィンとから得られる共重合体からなる層（A）を構成する成分]

本発明の4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3～20の他の $\alpha$ -オレフィンとから得られる共重合体からなる層（A）を構成する、4-メチル-1-ペンテン共重合体（a）は、4-メチル-1-ペンテンと、4-メチル-1-ペンテン以外のエチレンまたは炭素原子数3～20、好ましくは7～20、より好ましくは8～20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体である。

ここで4-メチル-1-ペンテン以外のエチレンまたは炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとしては、例えばエチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデ

セン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどが挙げられ、好ましくは、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセンである。これら4-メチル-1-ペンテン以外の他の $\alpha$ -オレフィン、1種単独でまたは2種以上組み合わせて用いることができ、これらの中でも、剛性および弾性率が良好であることから、1-デセン、1-ドデセン、または1-テトラデセンが好ましい。

4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)は、4-メチル-1-ペンテンから導かれる繰り返し単位を通常80モル%以上、好ましくは90~98モル%、より好ましくは93~98モル%、上記 $\alpha$ -オレフィンから導かれる繰り返し単位を、通常20モル%以下、好ましくは2~10モル%、より好ましくは2~7モル%の範囲で含有することが好ましい。4-メチル-1-ペンテン以外のエチレンまたは炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンから導かれる繰り返し単位の含有量が上記範囲内にあると、4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)はフィルム成型性および剛性に優れる。

また、この4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)は、ASTM D1238に準じ、荷重5.0kg、温度260℃の条件で測定したメルトフローレート(MFR)が通常0.5~250g/10分の範囲にあり、好ましくは1~150g/10分の範囲にある。MFRが上記範囲内にあると、4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)はフィルム成型性に優れ、機械的強度特性に優れる。

このような4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)は、従来公知の方法で製造することができ、例えば特開昭59-206418号公報に記載されているように、触媒の存在下に4-メチル-1-ペンテンと上記 $\alpha$ -オレフィンを重合することにより得ることができる。

この4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)には、本発明の目的を損なわない範囲で、耐熱安定剤、耐候安定剤、塩酸吸収剤、耐銅害防止剤、耐電防止剤などの通常ポリオレフィンに配合される従来公知の添加剤を配合することができる。

添加剤として、具体的には例えば以下のようなものが挙げられる。

フェノール系酸化防止剤としては、例えば2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、ステアリル(3,3-ジメチル-4-ヒドロキシベンジル)チオ

グリコレートなどのフェノール類および4, 4'-ブチリデンビス(2-tert-ブチル-5-メチルフェノール)の炭酸オリゴエステル(例えば重合度2、3、4、5、6、7、8、9、10など)などの多価フェノール炭酸オリゴエステル類が挙げられる。

- 5 イオウ系酸化防止剤としては、例えばジアルキルチオジプロピオネートなどが挙げられる。リン系酸化防止剤としては、例えばトリフェニルホスファイトなどが挙げられる。

また一般式  $M_x A l y (OH)_{2x+3y-2z} (A)_z \cdot a H_2O$

- (式中、MはMg、CaまたはZnを示し、Aは水酸基以外のアニオンを示し、  
10 x、yおよびzは正数であり、aは0または正数である。)で示される化合物を例えば塩酸吸収剤として添加することができる。

光安定剤としては、例えば2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノンなどが挙げられる。

また、ステアリン酸カルシウムなどの滑剤を用いることもできる。

- 15 このような添加剤は、4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)100質量部に対して、通常0.0001~10質量部の量で用いることができる。

また、特に離型フィルムとして使用する場合は、高温、高圧にさらされるが故に離型フィルム内部に含まれる不純物がフィルム表面に析出し、プレスに時に接触しているMLB製品等の表面に移行して析出することがある。この析出物はMLB製品等の  
20 MLB製品等の接着不良や導通不良、外観不良の原因となるため、不純物は少ないほうが良く、4-メチル-1-ペンテン共重合体(a)以外の組成からなる有機化合物が0.5質量%以下、好ましくは0.1質量%以下、さらに好ましくは0.05質量%以下であることが好ましい。特に、析出しやすいワックスおよびシリコーンは実質的に含まないことが好ましい。ここで実質的に含まないとは、積極的に添加しないことを意味し、0~0.01質量%未満、好ましくは0.0001~0.01質量%未満である。

[他の熱可塑性樹脂からなる層(B)を構成する成分]

本発明の他の熱可塑性樹脂層(B)としては、エチレンまたは炭素原子数3~



20の $\alpha$ -オレフィンを含むオレフィン系樹脂であり、エチレン、プロピレン、ブテン-1、ペンテン-1、ヘキセン-1、オクテン-1などのエチレンと炭素原子数3~8の $\alpha$ -オレフィンの単独重合体またはこれらオレフィン同士もしくは他のモノマーとの共重合体を挙げることができ、これらの中でも、層(A)と  
5 層(B)を剥離する際の強度が低く、延伸倍率を高くできることから熱収縮率が大きい、共重合体も含む意味でのポリプロピレン(b1)またはポリエチレン(b2)が好ましく、さらに延伸条件が広く設定でき、延伸し易いことからポリプロピレン(b1)が好ましい。

本発明で用いられるポリプロピレン(b1)は、プロピレンの単独重合体、またはプロピレンと、エチレンまたはプロピレン以外の炭素原子数4~20、好ましくは4~10の $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも1種のオレフィンとの共重合体である。

エチレンまたはプロピレン以外の炭素原子数4~20の $\alpha$ -オレフィンとしては、例えばエチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-  
15 1-ペンテン、1-オクテン、1-デセンおよびこれらの混合物が挙げられる。

ポリプロピレン(b1)では、プロピレンと、エチレンまたはプロピレン以外の炭素原子数4~20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(プロピレン/(エチレンまたは $\alpha$ -オレフィン)(プロピレンを除く))は、 $\alpha$ -オレフィンの種類によっても異なるが、一般に100/0~90/10、好ましくは100/0~95/5  
20 である。

ポリプロピレン(b1)は、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR)が0.1~100g/10分、好ましくは0.5~50g/10分の範囲にあり、密度が0.900g/cm<sup>3</sup>を超え、好ましくは0.900g/cm<sup>3</sup>を超え0.920g/cm<sup>3</sup>以下の範囲であることが望ましい。

25 本発明で用いられるポリエチレン(b2)は、エチレンの単独重合体、またはエチレンと炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体である。

炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとしては、例えばプロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセンおよびこれらの混合物が挙げられる。このうち炭素原子数3~10の

$\alpha$ -オレフィンを用いることが特に好ましい。

ポリエチレン (b 2) では、エチレンと炭素原子数 3~20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン/ $\alpha$ -オレフィン) は、 $\alpha$ -オレフィンの種類によっても異なるが、一般に 100/0~99/1、好ましくは 100/0~99.5/0.

5 5である。

ポリエチレン (b 2) は、190℃、2.16 kg 荷重におけるメルトフローレート (MFR) が 0.01~100 g/10分、好ましくは 0.05~50 g/10分の範囲にあり、密度が 0.900 g/cm<sup>3</sup>を超え、好ましくは 0.930~0.970 g/cm<sup>3</sup>の範囲にあることが望ましい。

10 このようなポリプロピレン (b 1) およびポリエチレン (b 2) は、従来公知の方法によって、触媒の存在下にエチレンまたはプロピレンと  $\alpha$ -オレフィンを重合することにより製造することができる。

なお、ポリプロピレン (b 1) およびポリエチレン (b 2) は、その特性を損なわない範囲内で、ジエン化合物から誘導される成分単位等のような、 $\alpha$ -オレフィンから誘導される成分単位以外の成分単位を含んでいてもよい。ジエン成分  
15 の含有量は、通常は 0~1 モル%、好ましくは 0~0.5 モル%である。

#### [多層シート]

本発明の延伸フィルムを製造するに好適な多層シートは、例えば 3 層の場合、  
20 上記 4-メチル-1-ペンテン共重合体 (a) からなる層 (A) と、上記ポリプロピレン (b 1) またはポリエチレン (b 2) からなる層 (B) とからなり、上記層 (A) の両面に上記層 (B) が設けられている、(B)/(A)/(B) の構成を有する 3 層のシートである。

剥離後、少なくとも一方の最外層が剥離後の層 (A) を含む多層フィルムを構成する場合、必要に応じて剥離前の多層シートに接着樹脂層 (C) が介在してもよく、例えば 7 層のシートとして、(B)/(A)/(C)/(D)/(C)/(A)/(B) の構成を有する多層シートを挙げることができる。ここで、層 (C) は接着樹脂層であり、層 (D) は DSC (示差走査熱測定) で測定した融点が 80~250℃、好ましくは 120~250℃の熱可塑性樹脂であれば良く、ポリ

エチレン、ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレートなどの公知の樹脂が使用可能である。

本発明で用いられる接着樹脂層 (C) としては、4-メチルー1-ペンテン共重合体 (a) からなる層 (A) と、DSC (示差走査熱測定) で測定した融点が  
5 80~250℃、好ましくは120~250℃の熱可塑性樹脂層 (D) とを接着  
しうるものであれば特に限定されないが、本発明で好ましく用いられる接着樹脂  
(C) としては、例えばポリ4-メチルー1-ペンテンの単独重合体または4-  
メチルー1-ペンテンと4-メチルー1-ペンテン以外のエチレンまたは炭素原  
子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体と、ポリ1-ブテンとからなる接着  
10 性樹脂組成物が挙げられる。

接着樹脂層 (C) が上記のような組成の接着性樹脂組成物からなると、層 (A)  
と層 (D) とを強固に接着することができる。

これらの中で、生産に際して簡素な設備で効率的に生産できることから、(B)  
/ (A) / (B) の構成を有する3層シートが好ましい。

15 また、このような多層シートを製造する方法として、例えば4-メチルー1-  
ペンテン共重合体 (a) と、ポリプロピレン (b1) またはポリエチレン (b2)  
とを共押出成形する方法、予めこれらの各樹脂からプレス成形、押出成形などに  
よって作製したシートなどをプレス成形して積層シートとする方法などを挙げる  
ことができるが、上記3層シートの場合、特に共押出成形が効率的に製造するこ  
20 とができ好ましい。

このような方法によって、層 (A) の両側に層 (B) を積層する3層シートが  
得られる。また上記7層シートも同様の方法によって製造することができる。

また、上記構成の多層シートの層 (B) をポリプロピレン (b1) またはポリ  
エチレン (b2) とすることにより、多層シートにおける層 (A) および (B)  
25 間 (例えば、3層の場合 (B) / (A) または (A) / (B) であり、7層の場  
合も (B) / (A) または (A) / (B) である) の延伸後のフィルムの剥離強  
度は500g/15mm以下にすることができ、かつ剥離して得られるフィルムの  
外観も良好となる。

## [多層シートの延伸]

得られた多層シートは、従来公知の例えばチューブラー法、テンター法等の方法により延伸することができる。たとえば、上記の3層シートを延伸する場合、剥離後のフィルムの熱収縮率20%以上、表面を粗化处理した銅箔面からの剥離面積50%以上を得るには、延伸する際の加熱温度は120～210℃、好ましくは130～180℃の範囲であり、延伸倍率は、通常5～20倍、好ましくは6～15倍、さらに好ましくは7～10倍である。

また、延伸する方法としては、前述のとおり従来公知の方法を適宜採用することができるが、特に延伸フィルムの厚みむらが少なく、かつ延伸倍率を高くできることから一軸延伸が好ましい。

また、熱収縮率が20%を下回らない範囲であれば、延伸フィルムの保管時の自然収縮を防止するために、樹脂の融点未満の温度でのアニーリング処理を行っても良い。

この多層フィルムの厚みは、剥離後のフィルムの厚みと延伸倍率から調整可能であり、特に限定されないが、通常10 $\mu$ m～10mm、好ましくは10 $\mu$ m～8mm、さらに好ましくは10 $\mu$ m～4mmである。なお当然のことながらシート成形と延伸は一つの装置で連続的に実施することが可能であり、そのような装置は市販されている。

## [本発明のフィルム]

本発明のフィルムは、上述の層(A)と、それに接して積層された層(B)を含む多層シートを延伸した後、該層(A)および(B)間を剥離することによって得られる、少なくとも一方の最外層が剥離後の層(A)であるフィルムである。剥離後の本発明のフィルムは、層(A)の単層フィルムまたは層(A)を含む多層フィルムであって、多層フィルムの場合、その最外層の片側が剥離後の層(A)または、その最外層の両面が剥離後の層(A)であり、その最外層の片側が剥離後の層(A)である場合、他の最外層がエチレンまたは炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンを含むオレフィン系樹脂からなる層であることが好ましい。これらの中で、外観が良好なこと、および使用後のフィルムを再度成形しての再利用性

から、層（A）の単層フィルムであることが好ましい。

剥離後の本発明のフィルムは、層（A）の厚みが薄いと、離型フィルムとして使用するには強度が弱く、剥離時にフィルムが裂けることで破損したフィルムが剥離面に残りやすく、厚いと離型の際にフィルムが変形し難い為、引き剥がし荷重が大きくなり最悪のケースでは、MLB製品等の変形につながる。本発明の剥離後のフィルムの厚さは10～500 $\mu$ mが適しており、好ましくは20～300 $\mu$ mであり、さらに好ましくは25～200 $\mu$ mである。

上述のようにして本発明のフィルムを製造することで本発明のフィルムを得ることができる。上述の方法で、多層シートを延伸後に剥離した本発明のフィルムの熱収縮率が20～40%のものを得られる。また、このフィルムは表面を粗化処理した銅箔面に重ねて熱プレスしたときのフィルムの銅箔面からの剥離面積が50%以上という特徴を有する。また条件を最適化することで離型用フィルムとして好ましい、熱収縮率が、25～35%、さらに好ましくは26～30%で、また60MPa以上の弾性率を有しており、フィルムの銅箔面からの剥離面積が、60～100%、好ましくは65～100%、さらに好ましくは70～100%と、良好な特性を有するフィルムを得ることができる。

本発明において熱収縮率とは、本発明のフィルムを加熱して収縮させた際の、加熱前の元の長さに対して、フィルムが収縮した割合であり、加熱前に室温で測定したフィルムの延伸方向の長さL1と、温度180℃雰囲気下で30分放置後に室温まで冷却し、30分後に測定した前記L1に相当する部分の長さL2を測定し、下記式（1）にて求めたものである。

$$\text{熱収縮率 (\%)} = (L1 - L2) / L1 \times 100 \quad (1)$$

（式中、L1：加熱前の延伸方向の長さcm、

L2：加熱後の延伸方向の長さcm）

本発明において剥離面積とは、本発明のフィルムを表面を粗化処理した銅箔に重ね、クッション材と金属板で挟んでプレス機で185℃、36kg/cm<sup>2</sup>で30分加熱プレスしたものを25℃に冷却した後、フィルム端面を持って、表面を粗化処理した銅箔面とフィルムがなす剥離角度90度で連続的に100mm/分の速度で剥がした際に剥離できた面積であり、本発明の目的からして剥離面積

は大きい方がよい。

剥離後の本発明のフィルムは高剛性であり、高耐熱性を備えたものであり、食品、医薬品、鮮度保持用途等の各種包装フィルムとして使用される。特に、MLB製造用に適した黒化処理銅箔面などの表面を粗化処理した銅箔面からの離型性がよい、離型フィルムとして好適なフィルムである。

#### [実施例]

本発明を、実施例によってより具体的に説明する。ただし、実施例は本発明をこれらのものに限定するものではない。

- 10 本実施例および比較例において4-メチルー1-ペンテン共重合体、ポリプロピレン、および表面を粗化処理した銅箔として以下のものを用いた。

#### (4-メチルー1-ペンテン共重合体 (a))

- 15 4-メチルー1-ペンテンと、1-デセンとの共重合体。この共重合体における4-メチルー1-ペンテン含量：97mol%、1-デセン含量：3mol%。  
MFR (ASTM D1238に準じ、荷重5.0kg、温度260℃で測定)：12g/10分

#### (ポリプロピレン (b1))

- 20 (株) グランドポリマー製、商品名：F-122  
密度：0.91g/cm<sup>3</sup>、MFR (ASTM D1238に準じ、荷重2.16kg、温度230℃で測定)：2g/10分

#### (表面を粗化処理した銅箔)

- 25 銅箔表面を過酸化水素/硫酸系エッチング液((株) 荏原電産製、商品名 エバケムネオブラウン) でエッチング処理して得た。得られた表面を粗化処理した銅箔の表面を、非接触3次元微小表面形状観測システムNT-2000(WYKO社製)で測定した。表面粗度は、Ra：0.27~0.34μm、Rt：2.01~2.22μmであった。

## 実施例 1

モダン社製 2 種 3 層の T ダイ押出成形機を用い、中間層に 4-メチルー 1-ペンテン共重合体 (a) をシリンダー温度 290℃で、外層のポリプロピレン (b 1) をシリンダー温度 240℃で、ダイス温度は 270℃で共押出成形した。ポリプロピレン層が 50 μm、ポリ-4-メチルー 1-ペンテン層の厚みが 200 μm の未延伸シートを得た。

未延伸シートを 7 cm 角に切り、温度 150℃で 5 倍に一軸延伸した後、両側のポリプロピレン層を剥離させた。剥離強度は 100 g/15 mm 以下であった。

次いで、得られた 4-メチルー 1-ペンテン層の延伸フィルムを縦 6 cm × 横 12 cm に切出したものに、表面を粗化处理した銅箔面を縦 5 cm × 横 10 cm に切り出したものを重ね、フィルムの両端を 1 cm だけプレスされないようにして、表面粗度 6 S の金属板 2 枚とクッション材を挟んで加熱プレス機を用いて、185℃、36 kg/cm<sup>2</sup> で 30 分加熱加圧し、次いでプレス機より取り出して 25℃に冷却した後、フィルム端面を持って、表面を粗化处理した銅箔面とフィルムがなす剥離角度 90 度で連続的に 100 mm/分の速度で剥がしてフィルムの端および黒化处理銅箔の端を T 字型に剥離した。銅箔面から完全に剥離した場合は 100%、全く剥離しなかった場合を 0% として、表面を粗化处理した銅箔面を 100 等分したときの、フィルムが剥離した部分の升目の数を数えて表面を粗化处理した銅箔面からの剥離面積を求めた。

また、フィルムの外観を目視で観察し、下記基準で評価した。良：フィルム外観上のムラが殆ど認められない。不良：フィルム外観上のムラがある。結果を表 1 に示した。

また、得られたフィルムを延伸方向 (MD 方向) に 15 cm 垂直方向 (TD 方向) に 2 cm の長さで切り取り、室温でフィルムの MD 方向の長さ L1 を測定した。次いで、切り出したフィルムを温度 185℃の高温槽中に 30 分間放置した後、室温まで冷却して、30 分後に L1 に相当する部分の長さ L2 を測定し、下記式 (1) にて熱収縮率を求めた。

$$\text{熱収縮率 (\%)} = (L1 - L2) / L1 \times 100 \quad (1)$$

(式中、L1：加熱前の延伸方向の長さ cm、

L 2 : 加熱後の延伸方向の長さ c m)

得られたフィルムを用い、固体粘弾性測定装置（レオメトリクス社製、RSA-Ⅱ）を用いて、40℃から200℃まで5℃/分で昇温しながら、周波数2 HzでMD方向の弾性率を測定し、温度185℃での貯蔵弾性率を弾性率とした。

5

#### 実施例 2

延伸倍率のみを6倍とした以外は実施例1と同様の操作を実施した。結果を表1に示した。

10 

#### 実施例 3

延伸倍率のみを7倍とした以外は実施例1と同様の操作を実施した。結果を表1に示した。

#### 実施例 4

15 

延伸倍率のみを8倍とした以外は実施例1と同様の操作を実施した。結果を表1に示した。

#### 実施例 5

20 

延伸倍率のみを4.3倍とした以外は実施例1と同様の操作を実施した。結果を表1に示した。

#### 比較例 1

25 

4-メチルー1-ペンテン共重合体（a）／ポリプロピレン（b1）／4-メチルー1-ペンテン共重合体（a）の層間に下記接着樹脂（c）を使用して、80／40／80 μmの構成で押出成形した。得られた多層シートを実施例1と同様の操作によって180℃で4倍に延伸した後、得られたフィルムの層間を剥離させることなく、表面を粗化处理した銅箔面からの剥離面積を測定した。結果を表1に示した。

接着樹脂（c）：4-メチルー1-ペンテン共重合体（1-オクタデセン含量：



6質量%、MFR：3.0g/10分)を40質量部、1-ブテン共重合体(エチレン含量：5質量%、MFR：2.5g/10分)を40質量%、Irganox 1010(商品名、Ciba(株)製)を0.01質量部、およびステアリン酸カルシウム(三共有機合成(株)製)を0.03質量部を、ヘンシェルミキサーで3分間低速回転で混合し、混合物を二軸押出機で280℃の温度で押出して得られた混合物。

#### 比較例2

ポリプロピレン層および接着樹脂層をなくした、4-メチルー1-ペンテン共重合体の厚さ200μmの単層シートを4倍延伸した以外は比較例1と同様の操作を実施した。結果を表1に示した。

#### 比較例3

4-メチルー1-ペンテン共重合体の厚さ250μmの単層シートを5倍延伸した以外は比較例2と同様の操作を実施したが、得られたフィルムの外観が不良であった。結果を表1に示した。

表 1

	単位	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2	比較例 3
剥離強度	g/15cm	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	---	---	---
延伸倍率	%	5	6	7	8	4.3	4	4	5
延伸可否	---	可	可	可	可	可	可	可	可
剥離面積	%	60	65	70	80	50	30	20	25
外観	---	良	良	良	良	良	不良	不良	不良
収縮率	%	22	25	26	28	20	18	15	18
弾性率	M.P a	66	70	72	74	64	63	---	---
延伸後の層(A)の厚み	$\mu\text{m}$	40	35	28	25	47	50 <sup>*1</sup>	50	50

※1：延伸後の多層フィルムの厚み。

## 産業上の利用可能性

本発明の離型性がさらに改善された離型フィルムに適したフィルムは、高剛性で  
厚薄精度が良く、高耐熱性を備えたものであり、MLB製造用に適した黒化处理  
5 銅箔面などの表面を粗化处理した銅箔面からの離型性がよい離型フィルムに好適  
のものであり、工業的価値は極めて高い。

10

15

20

25

## 請求の範囲

1. 4-メチル-1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなり実質的にワックスまたはシリコンを含まない層(A)を少なくとも一方の最外層とするフィルムであり、表面を粗化处理した銅箔面と加熱加圧処理した時の剥離面積が50%以上である延伸フィルム。
2. 4-メチル-1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなる層(A)を少なくとも一方の最外層とするフィルムであり、延伸方向の熱収縮率が20%以上である延伸フィルム。
3. 請求項1乃至2の延伸フィルムが、層(A)の単層フィルムであり、一軸延伸によって得られたものである延伸フィルム。
4. 請求項1乃至3のいずれかに記載の延伸フィルムである離型フィルム。
5. 4-メチル-1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチル-1-ペンテンとエチレンまたは炭素原子数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体からなり実質的にワックスまたはシリコンを含まない層(A)の少なくとも一方の最外層にポリプロピレンおよび/またはポリエチレンの層(B)を設けてなるシートを4.3倍以上に延伸し、次いで少なくとも一方の最外層のポリプロピレンおよび/またはポリエチレンの層(B)を剥離除去することを特徴とする延伸フィルムの製造方法。

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B29C55/02 B32B27/32 C08J5/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B29C55/00-55/30 B29C33/68  
B29C43/00-43/58 B29C51/00-51/46  
C08J5/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-225207 A (三井化学株式会社) 2002. 08. 14, 全文 & EP 1264685 A1, 全文 & WO 2002/024449 A1	1-5
A	JP 2002-192673 A (三井化学株式会社) 2002. 07. 10, 全文 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 60-206620 A (本州製紙株式会社) 1985. 10. 18, 全文 (ファミリーなし)	1-5

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 06. 2004

国際調査報告の発送日

06. 7. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高崎 久子

4F

9635

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2001-9890 A (東レ株式会社) 2001. 01. 16, 請求項2, 実施例 (ファミリーなし)	5
A	J P 9-234786 A (呉羽化学工業株式会社) 1997. 09. 09, 請求項2, 段落【0017】-【0022】 (ファミリーなし)	5

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1, 3, 4, 5 (または1)に係る発明は、表面を粗化处理した銅箔面と加熱加圧処理した時の剥離面積が50%以上であるフィルムに関するものである。  
請求の範囲2 (または2, 3, 4, 5)に係る発明は、延伸方向の熱収縮率が20%以上であるフィルムに関するものである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。  
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

## &lt;調査の対象について&gt;

請求の範囲1は、「表面を粗化处理した銅箔面と加熱加圧処理した時の剥離面積が50%以上である」という所望の特性を有する、あらゆる「4-メチルー1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチルー1-ペンテンとエチレンまたは炭素数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとからなり、実質的にワックスまたはシリコーンを含まない層(A)を最外層とする延伸フィルム」を包含するものであるが、PCT第5条の意味において開示されているのは、明細書に記載された特定の製造方法により得られるフィルムのみであり、PCT第6条の意味での裏付けを欠いている。

よって、調査は、明細書に裏付けられ、開示されている範囲、すなわち、明細書に具体的に記載されている特定の製造方法により得られるフィルムについて行った。

請求の範囲2は、「延伸方向の熱収縮率が20%以上である」という所望の特性を有する、あらゆる「4-メチルー1-ペンテンを80モル%以上有する4-メチルー1-ペンテンとエチレンまたは炭素数3~20の他の $\alpha$ -オレフィンとからなる層(A)を最外層とする延伸フィルム」を包含するものであるが、PCT第5条の意味において開示されているのは、明細書に記載された特定の製造方法により得られるフィルムのみであり、PCT第6条の意味での裏付けを欠いている。

よって、調査は、明細書に裏付けられ、開示されている範囲、すなわち、明細書に具体的に記載されている特定の製造方法により得られるフィルムについて行った。

請求の範囲1または2を引用している請求の範囲3、4についても、同様の理由により、調査は、明細書に裏付けられ、開示されている範囲、すなわち、明細書に具体的に記載されている特定の製造方法により得られるフィルムについて行った。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004290

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B29C55/02, B32B27/32, C08J5/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B29C55/00-55/30, B29C33/68, B29C43/00-43/58, B29C51/00-51/46, C08J5/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-225207 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 14 August, 2002 (14.08.02), Full text & EP 1264685 A1 full text & WO 2002/024449 A1	1-5
A	JP 2002-192673 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 10 July, 2002 (10.07.02), Full text (Family: none)	1-5
A	JP 60-206620 A (Honshu Seishi Kabushiki Kaisha), 18 October, 1985 (18.10.85), Full text (Family: none)	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 June, 2004 (17.06.04)Date of mailing of the international search report  
06 July, 2004 (06.07.04)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004290

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-9890 A (Toray Industries, Inc.), 16 January, 2001 (16.01.01), Claim 2; examples (Family: none)	5
A	JP 9-234786 A (Kureha Chemical Industry Co., Ltd.), 09 September, 1997 (09.09.97), Claim 2; Par. Nos. [0017] to [0022] (Family: none)	5

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004290

## Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Inventions according to claims 1, 3, 4 and 5 (or the invention according to claim 1) relate to a film which exhibits a release area of 50 % or more when heat-treated together with a copper foil surface having been subjected to a roughening treatment.  
The invention according to claim 2 (or inventions according to claims 2, 3, 4 and 5) relates to a film which exhibits a thermal shrinkage percentage in the direction of stretching of 20 % or more.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004290

<Subject matter of the search>

Claim 1 involves any of "a stretched film, which has a layer (A) being comprised of a copolymer prepared from 80 mole % or more of 4-methyl-1-pentene and ethylene or an  $\alpha$ -olefin having 3 to 20 carbon atoms as at least one outermost layer and being substantially free of a wax or a silicone" which have a desired property of "to exhibit a release area of 50 % or more when heat-treated together with a copper foil surface having been subjected to a roughening treatment". Whereas, only a film produced by a specific production method described in the specification is disclosed in the meaning of PCT Article 5. Therefore, claim 1 is not supported in the meaning of Article 6.

Accordingly, the search has been carried out with respect to the scope disclosed in and supported by the specification, that is, the film produced by a specific production method described specifically in the specification.

Claim 2 involves any of "a stretched film, which has a layer (A) being comprised of a copolymer prepared from 80 mole % or more of 4-methyl-1-pentene and ethylene or an  $\alpha$ -olefin having 3 to 20 carbon atoms as at least one outermost layer" which have a desired property of "to exhibit a thermal shrinkage percentage in the direction of stretching of 20 % or more". Whereas, only a film produced by a specific production method described in the specification is disclosed in the meaning of PCT Article 5. Therefore, claim 2 is not supported in the meaning of Article 6.

Accordingly, the search has been carried out with respect to the scope disclosed in and supported by the specification, that is, the film produced by a specific production method described specifically in the specification.

Also for claims 3 and 4, because of the similar reasons, the search has been carried out with respect to the scope disclosed in and supported by the specification, that is, the film produced by a specific production method described specifically in the specification.